

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 08 NOV 2005



PCT

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000053706	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/009568	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 27.08.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 10.09.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C209/48, C07C211/27		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 07.07.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 07.11.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Kieman, A. Tel. +49 89 2399-8033 	

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

Beschreibung, Seiten

1-11 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-12 eingegangen am 08.07.2005 mit Schreiben vom 07.07.2005

Zeichnungen, Blätter

1/1 in der ursprünglich eingereichten Fassung

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/009568

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-12
Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche
Nein: Ansprüche 1-12 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-12
Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

D1: EP-A-1 193 244
D2: US-A-2 970 170
D3: EP-A-1 279 661
D4: GB-A-1 164 354
D5: EP-A-1 209 146

Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin durch Ammonoxidation von Xylol, Quenchen des gasförmigen Reaktionsgemisches mit einem organischen Lösungsmittel und Hydrierung des darin enthaltenen Phthalodinitrils in der erhaltenen Quenchflüssigkeit. Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) als Quenchflüssigkeit eingesetzt wird.

Neuheit

Die Verwendung von N-Methyl-2-pyrrolidon als Quenchflüssigkeit bei der Ammonoxidation von Xylol ist im Stand der Technik nicht offenbart.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-12 ist daher neu und erfüllt damit die Erfordernisse des Artikels 33(2) PCT.

Erfinderische Tätigkeit

Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(3) PCT, da der Gegenstand der Ansprüche 1-12 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit beruht.

D1, welches als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird, offenbart ebenfalls ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin durch Ammonoxidation von Xylen, Auffangen des entstandenen Phthalodinitrils in einem organischen Lösungsmittel und anschließende Hydrierung.

Das Verfahren in D1 unterscheidet sich von dem vorliegenden Verfahren in der Wahl des organischen Lösungsmittels, das zum Quenchen und gleichzeitig zur Hydrierung verwendet wird.

Die zu lösende Aufgabe kann darin gesehen werden, ein alternatives Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin bereitzustellen, welches bei mit dem Verfahren aus D1 vergleichbaren Durchsätzen aufgrund verringerter Stoffströme, insbesondere Lösungsmittelströme, verkleinerte Apparate und Maschinen ermöglicht (Beschreibung, Seite 2, Zeilen 18-23).

In Beispiel 6 wurden zwar Vergleichswerte für die Löslichkeit von Isophthalodinitril (IPDN) in den Lösungsmitteln N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP), Pseudocumol und Mesitylen bei verschiedenen Temperaturen angegeben (siehe Beschreibung, Seite 11, Zeilen 10-18). Mit dem Schreiben vom 07.07.2005 wurde ein Versuchsbericht eingereicht, der die Löslichkeiten von Isophthalodinitril in weiteren aromatischen Lösungsmitteln wie m-Xylen mit der Löslichkeit in NMP vergleicht. Aus diesem Bericht ist ersichtlich, dass die Löslichkeit von Isophthalodinitril in NMP der Löslichkeit in anderen aromatischen Lösungsmitteln deutlich überlegen ist.

In vorliegendem Anspruch 1 wird jedoch nicht nur die Ammonoxidation von meta-Xylol zu Isophthalodinitril, sondern auch von para-Xylol zu Terephthalodinitril beansprucht. Die Löslichkeiten von Terephthalodinitril in den jeweiligen Lösungsmitteln sind jedoch nicht verglichen worden.

Im Schreiben vom 07.07.2005 (Seite 2, § 8) bemerkte der Anmelder, dass keine begründete Vermutung bestehe, dass die höhere Löslichkeit nicht auch für Terephthalodinitril gegeben sei. Die Beweislast dafür, dass ein bestimmter Effekt tatsächlich erzielt wird, liegt jedoch bei demjenigen, der einen solchen Effekt beansprucht.

Eine erfinderische Tätigkeit kann daher derzeit lediglich für ein Verfahren zur Herstellung von meta-Xylylendiamin, nicht aber von para-Xylylendiamin anerkannt werden (Artikel 33(3) PCT).

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
BERICHT ZUR PATENTIERBARKEIT
(BEIBLATT)**

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/009568

Industrielle Anwendbarkeit

Gegen die industrielle Anwendbarkeit bestehen keine Bedenken.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von meta- oder para-Xylylendiamin umfassend die Schritte
5 Ammonoxidation von meta- oder para-Xylol zu Iso- oder Terephthalodinitril, wobei das dampfförmige Produkt der Ammonoxidationsstufe direkt mit einem flüssigen organischen Lösungsmittel in Kontakt gebracht wird (Quench) und Hydrierung des Phthalodinitrils in der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension,
10 dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei dem organischen Lösungsmittel um N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) handelt.
2. Verfahren nach Anspruch 1 zur Herstellung von meta-Xylylendiamin umfassend die Schritte Ammonoxidation von meta-Xylol zu Isophthalodinitril und Hydrierung
15 des Isophthalodinitrils.
3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass vor der Hydrierung des Phthalodinitrils aus der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension Wasser und gegebenenfalls Produkte mit einem Siedepunkt niedriger als
20 Phthalodinitril (Leichtsieder) teilweise oder vollständig destillativ abgetrennt werden.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass vor der Hydrierung des Phthalodinitrils keine Abtrennung von Produkten mit einem Siedepunkt höher als Phthalodinitril (Hochsiedern) aus der erhaltenen
25 Quenchlösung oder -suspension erfolgt.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Ammonoxidation bei Temperaturen von 300 bis 500°C an einem Katalysator enthaltend V, Sb und/oder Cr, als Vollkatalysator oder auf einem inerten
30 Träger, durchgeführt wird.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass bei dem Quench mit NMP die Temperatur des Quenchaustrags 40 bis
35 180°C beträgt.
7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung in Gegenwart von Ammoniak durchgeführt wird.
- 40 8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung bei Temperaturen von 40 bis 150°C an einem Katalysator

13

enthaltend Ni, Co und/oder Fe, als Vollkatalysator oder auf einem inerten Träger, durchgeführt wird.

- 5 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass nach der Hydrierung eine Reinigung des Xylylendiamins durch Abdestillation von NMP, gegebenenfalls Ammoniak sowie gegebenenfalls leichtersiedender Nebenprodukte über Kopf und destillativer Abtrennung von schwerersiedenden Verunreinigungen über Sumpf erfolgt.
- 10 10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man nach der Hydrierung das NMP, gegebenenfalls Ammoniak sowie gegebenenfalls leichtersiedende Nebenprodukte über Kopf abdestilliert und danach schwerersiedende Verunreinigungen vom Xylylendiamin destillativ über Sumpf abtrennt.
- 15 11. Verfahren nach einem der beiden vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Xylylendiamin nach der Destillation zur weiteren Reinigung mit einem organischem Lösungsmittel extrahiert wird.
- 20 12. Verfahren nach dem vorhergehenden Anspruch, dadurch gekennzeichnet, dass man zur Extraktion Cyclohexan oder Methylcyclohexan verwendet.